

11. W 2189-02

**PRODUCT AND PROCESS OF MAKING MICROCRYSTALLINE CELLULOSE****Publication number:** WO9406309**Publication date:** 1994-03-31**Inventor:** RUSZKAY THOMAS A; ELLIOT DONALD**Applicant:** FMC CORP (US)**Classification:**

**- international:** A23G1/00; A23G3/00; A23G3/34; A23G9/32;  
A23L1/0534; A23L1/24; A23L1/38; A23G1/00;  
A23G3/00; A23G3/34; A23G9/32; A23L1/052;  
A23L1/24; A23L1/36; (IPC1-7): A23L1/38; A23L1/0534

**- european:** A23G1/00; A23G1/00K; A23G3/00; A23G3/00K;  
A23G9/02; A23L1/0534; A23L1/24; A23L1/38

**Application number:** WO1993US08540 19930910**Priority number(s):** US19920949301 19920922**Also published as:**

EP0661934 (A1)

EP0661934 (A4)

EP0661934 (A0)

**Cited documents:**

US3023104

**Report a data error here****Abstract of WO9406309**

A pure, smooth microcrystalline cellulose bulking agent for oil containing foods such as nut butters, chocolates, cream containing foods, mayonnaise, and salad dressings. The bulking agent having a loose bulk density greater than 0.40 and an oil absorptivity of less than 1.0.

---

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表平7-507692

第1部門第1区分

(43) 公表日 平成7年(1995)8月31日

| (51) Int.Cl.* | 識別記号 | 庁内整理番号   | F I |
|---------------|------|----------|-----|
| A 2 3 L 1/38  |      | 9161-4 B |     |
| A 2 3 G 1/00  |      | 7624-4 B |     |
| A 2 3 L 1/308 |      | 9359-4 B |     |

審査請求 有 予備審査請求 有 (全 6 頁)

|               |                             |          |   |
|---------------|-----------------------------|----------|---|
| (21) 出願番号     | 特願平6-508181                 | (71) 出願人 | エフ エム シー コーポレーション<br>アメリカ合衆国ペンシルベニア州 19103<br>フィラデルフィア マーケット ストリ<br>ート 1735 |
| (86) (22) 出願日 | 平成5年(1993)9月10日             | (72) 発明者 | ラズケイ, トーマス エイ<br>アメリカ合衆国ニュージャージー州<br>08054 マウント ローレル シーガル<br>コート 10         |
| (85) 翻訳文提出日   | 平成7年(1995)3月22日             | (72) 発明者 | エリオット, ドナルド<br>アメリカ合衆国ペンシルベニア州 19014<br>アストン チェリー ツリー ロード<br>509            |
| (86) 国際出願番号   | P C T / U S 9 3 / 0 8 5 4 0 | (74) 代理人 | 弁理士 斉藤 武彦   |
| (87) 国際公開番号   | W O 9 4 / 0 6 3 0 9         |          |   |
| (87) 国際公開日    | 平成6年(1994)3月31日             |          |   |
| (31) 優先権主張番号  | 9 4 9 , 3 0 1               |          |   |
| (32) 優先日      | 1992年9月22日                  |          |   |
| (33) 優先権主張国   | 米国 (U S)                    |          |   |

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 微晶質セルロース生成物及びその製造法

(57) 【要約】

ナッツバター、チョコレート、クリーム含有食品、マヨネーズ、及びサラダドレッシング等の含油食品用の純粋で滑らかな微晶質セルロース充填剤。本充填剤は0.40より大きい疎かさ密度及び1.0より小さい油吸収度をもつ。

## 請求の範囲

1. 少なくとも0.4 g/cm<sup>3</sup>の疎かさ密度を有し、ほぼ球状である実質的に滑らかな表面をもつ微晶質セルロース粒子からなることを特徴とする組成物。
2. 微晶質セルロースが5から35ミクロンの範囲の平均粒径をもつことを特徴とする請求項1記載の組成物。
3. 微晶質セルロースが20から30ミクロンの範囲の平均粒径をもつことを特徴とする請求項1記載の組成物。
4. A) 水性のセルロース・スラリーを形成し、  
B) 該セルロースを15ミクロンより小さい平均粒径をもつ中間体摩滅微晶質セルロースに摩滅し、そして  
C) 該中間体から50ミクロンより小さい平均粒径をもつ実質的に球状の微晶質セルロース凝集物を形成する工程からなることを特徴とする請求項1から3のいずれか1項に記載される微晶質セルロースの製造法。
5. 工程Cで製造される摩滅微晶質セルロース凝集物が20から35ミクロンの範囲の平均粒径をもつことを特徴とする請求項4記載の製造法。
6. 1.0より小さい油吸収度及び35ミクロン又はそれより小さい平均粒径をもつ滑らかで球状の微晶質セルロース凝集物充填剤を含むことを特徴とするカロリー低減食品。
7. 純粋で滑らかで球状の微晶質セルロース凝集物充填剤が0.88より小さい油吸収度をもつことを特徴とする請求項6記載のカロリー低減食品。
8. 食品がチョコレート、ピーナッツバター、焼き物、又はクリーム詰め物であることを特徴とする請求項6又は7記載のカロリー低減食品。
9. A) セルロースを摩滅して15ミクロンより小さい平均粒径をもつ中

間体を形成し、

- B) 摩滅中間体の水性スラリーを形成し、そして、
- C) 該中間体から50ミクロンより小さい平均粒径をもつ実質的に純粋で球状の微晶質セルロース凝集物を形成する、  
工程からなることを特徴とする微晶質セルロースの製造法。
10. 凝集物が35ミクロンより小さく、そして0.40 g/cm<sup>3</sup>より大きいかさ密度をもつことを特徴とする請求項9記載の製造法。
11. 請求項10記載の製造法に従って製造されたことを特徴とする生成物。

## 明 細 書

## 微晶質セルロース生成物及びその製造法

本発明は食品系用の無カロリー充填（バルキング）剤の分野に関する。より詳細には低水分食品系用の微晶質セルロース充填剤に関する。

脂肪及び油には栄養的、機能的及び感覚的特性が認められる。食品工業は全脂系の品質と味覚をもつ種々の低脂肪食品を提供し増やすことにより消費者の要求に答えてきた。消費者に受け入れられる低脂肪食品の開発は、消費者の望む味覚と風合いとを犠牲にすることなしに幾らか又は全ての脂肪を置換する刺激であると共に新規な食品成分を生み出した。感覚的特性は重要である。

脂肪質又は油っぽい食感、合して脂肪質又は油質に認めうる食感覚を形成する、幾つかの基本的パラメーターの組合せと表現しうる。これらのパラメーターは粘度（厚み、ボディ、フルネス）、潤滑度（クリームネス、滑らかさ）、吸収／吸着（味らいへの物理的効果）及びその他（凝集度、ロウ質及び口内被覆等の要素が含まれよう）がある。

ある種の形態のセルロースは脂肪を代替しうる充填剤として用いられてきた。それら形態の一つである微晶質セルロース（MCC）は部分的に精製されて脱重合されたセルロース形態であり、そして纖維性植物原料から無機酸により得たパルプを処理して得られる。酸はセルロースポリマー鎖の低次の又は非品質の領域を選択的に攻撃し、これにより品質部位を曝し出し自由にし、これがセルロース結晶の凝集物を形成する。反応混合物は洗浄されて分解副産物を除去し、得られた水で湿ったケーキ及び乾燥したセルロース結晶凝集物又は一層普通の微晶質セルロースを回収する。

微晶質セルロースは白色、無臭、無味、比較的流動性の粉末であり、水、有機溶媒、希釈アルカリ及び希釈酸に不溶である。約30ミクロン以下の

サイズの小粒子が、バルキング剤及び脂肪代替物として食品中に用いられる成品として用いられてきた。

米国特許第4,911,946号は実質的に回転槽円形状であって平均粒径分布が約0.1から約0.2ミクロンであって約2%以下の粒子数は3ミクロン以上である炭水化物を、通常に食品中に含まれる全て又は一部の脂肪／クリーム含有食品を代替するための脂肪／クリーム含有食品用添加剤として使用することを教示する。

米国特許第4,814,195号は充填剤の粒径、油結合能力及び密度がその味覚と共に合わさって、その特定用途への適合を決定すると教示する。この文献によれば一般的に粒径は5から35ミクロンの範囲にあって35ミクロンを越える粒子は検出されないのである。油結合能力は20から約45%の範囲にあって、そして密度は立方cm当たり1.3から約1.6グラムの範囲内にあるべきである。

該米国特許第4,814,195号によれば商業的入手可能なセルロース、アルファセルロース、微纖維化セルロース、天然纖維、及びアビセル（登録商標）微晶質セルロースは大きな多孔質表面領域をもち、これらは過剰量の油を吸収し、そして本発明のカロリー低減ピーナッツバター製品に用いるに好適でない。

該特許はさらに、商業的入手可能な微晶質セルロースの油結合能力を最小限にする一つの方法は極微構成粒子を凝集させて、実質的に有効粒子径が増加し油結合能力が有効に低下した滑表面をもつ凝集物を形成させることと教示する。これら粒子が球状であることも、これが非一極微粒子でなしうることも教示されていない。

製菓工業での注目が増している球状粒子の製造法は球状化法である。この技術に不可欠な面は典型的に工程：粉末化した成分の乾燥ブレンド形

成；プラスチック塊又は顆粒とするための結合剤存在下での通常は水性である、液による乾燥ブレンドの湿潤化；塊をスクリーン又は鑄型から押し出してスバゲッチ押出物を形成；短い円筒物に押出物を切断、続いて溝切り表面上に円筒物を回転させて球にする丸め工程を含む。この処理の一層の詳細はA. D. Reynold, 「ア・ニュー・テクニック・フォー・ザ・プロダクション・オブ・スフェリカル・パーチクル」、マニファクチャリング・ケミスト・アンド・エアロゾル・ニュース、1970年6月にある。

本発明は新規形態の微晶質セルロース及びその製法を提供する。この新規形態を「純球麻減微晶質セルロース」と呼ぶ。本発明の純球麻減微晶質セルロースは油基本の食品又は食品成分（ナッツバター、チョコレート、アイスクリーム、マヨネーズ、ラード及び脂肪物が含まれよう）中の充填剤として用いるのに特に好適である。

純球麻減微晶質セルロースは機械的に粒径減少させた加水分解セルロースをスプレー乾燥することによって製造される。形成される生成物はこれまでに製造されていないものである。生成物は実質的に滑らかであり、絶対密度が高く、疎かさ密度が高く、油吸収度が低く、そして150倍率で見ると実質的に球形を有する粒子として形成される点で独自である。

球麻減微晶質セルロースは実質的に純粋なセルロースであって一つの成分系と見なすので「純」と呼ばれる。

本発明の低減した表面積／体積比の結果、この生成物は球形状及び高い絶対粒子密度を有し、この生成物の液（油及び／又は水の両方）結合能力は他のセルロース基本生成物に較べて著しく低減されている。

粒子の絶対密度は非常に高く、一般には1.20 g/cm<sup>3</sup>を超える。好ましくは密度は1.35 g/cm<sup>3</sup>を超え、最も好ましくは生成物は1.50 g/cm<sup>3</sup>を超える

一般的にはスラリー中の麻減微晶質セルロースは5から15ミクロンの範囲の最終平均粒径をもつ。好ましくはスラリー中の微晶質セルロースの平均粒径は純球麻減微晶質セルロースの平均粒径より小さい。

平均粒径が5から50ミクロンの範囲内の最終生成物を製造できるけれども、実際的には所望の粒径は最終使用者の要求により大きく調節されるから、それより大きく又は小さく製造されてよい。好ましくは、油基本系の充填剤として用いるための粒径は一般には5から45ミクロンの範囲である。そうした油基本用途のより好ましい粒径は10から35ミクロンであり、最も好ましくは10から30ミクロンの範囲である。

操作の実施例以外又は特に示される場合を除いてここに用いる成分量、パラメーター、又は反応条件の数値は全て用語「約」により修飾されるものと理解されるべきである。

機械的粒径低減された微晶質セルロースをかき密度が高く超安定で著しく液体吸収度を低減された球状形態にスプレー乾燥する製造法の実施例を以下に示す。

以下の説明及び試験はここに示す実施例理解を助けるであろう。

#### 疎かさ密度

疎かさ密度は乾燥した麻減微晶質セルロース生成物の密度の程度である。疎かさ密度は乾燥した生成物を容器に注いで次いで重量計測して計られる。疎かさ密度は微晶質セルロース重量を微晶質セルロース容積で割ったものであり、粒子密度の、そして粉末の充填能力の関数である。

修正ASTM B329-81手順を疎かさ密度決定に用いた。ASTM手順の上部直ちゅうじょうごの16メッシュスクリーンを10メッシュスクリーンに替えて修正した。

実際的には試料を25 mL容器に入れて重量測定した。その比すなわち

密度を有する。密度は、湿段階中間物の形成を調節することにより粒径の減少の程度の異なる中間体を用いて変えることができる。中間体段階で用いる粒子が大きい程、隣接する粒子との強い結合が形成されて生成物が高密度となることはなくなる。

粒子の高い密度と低い吸収度は、それから最終凝集物が形成される湿段階生成物である。麻減微晶質セルロース中間体の形成によって助成される。

このタイプの生成物はこれまでになかったものである。実際、従来技術の生成物は粒径の減少と共に疎かさ密度が顕著に減少することにある。本発明の生成物の疎（loose）かさ密度は主に製造パラメーターに依存しており、最終粒径に依存しない特徴がある。本発明の生成物では疎かさ密度は広範囲の最終生成物粒径に対してほとんど一定である。

疎かさ密度は通常は約0.40 g/cm<sup>3</sup>より大きい。好ましくは疎かさ密度は0.45 g/cm<sup>3</sup>より大きい。最も好ましくは疎かさ密度は0.50から0.65 g/cm<sup>3</sup>の範囲にあって平均粒径は5ミクロンから35ミクロンの範囲にある。従来技術においては充填体積のため一般に、粒径の減少と共に疎かさ密度は増加した。本発明の生成物は相対的に粒子径とは独立した疎かさ密度をもつ傾向にある。

純球麻減微晶質セルロースは微晶質セルロースを麻減し続いてスプレー乾燥して純球麻減微晶質セルロースを形成することにより製造される。このスプレー乾燥された生成物はこれまでに用いられた又は論じられた生成物と、実質的球状である点で異なる。加えて高密度であり、著しく滑らかで堅い表面をもち、そして実質的に低減された液体吸収度をもつ。1つの態様において純球麻減微晶質セルロースは、セルロースのスラリーを形成してスラリー中でセルロースを麻減し、そして次いで麻減セルロースをスプレーして製造される。

g/cm<sup>3</sup>が試料の疎かさ密度である。

#### 絶対粒子密度

絶対粒子密度は乾燥した試料を25 mL容器に充填して重量測定し、次いで液体を容器中の試料に容器があふれるまで加えて次いで、湿試料の重量測定をして決定される。粒子密度は25 mL試料の乾重量（g）を粒子の占めた容積で割ったものである。但し粒子のよめた容積は（容器容積）－（液体の25℃の容積）である。液体の容積は液体を加えたときの試料の重量から試料の乾重量を差し引くことにより、その25℃の重量から決定される。

用語「乾試料」は試料が実質的に油及び水を含まないことを示す。

用語「湿試料」は試料が油又は水を含むことを示す。

#### 粒子形状

粒子の形状は150倍の写真により決定された。150倍率で本発明の粒子は当該分野技術者に球状に見える。

#### 吸収度試験

油又は水、又は油と水に対する吸収度は次の手順により決定される。3 gの乾試料を27 gの液体と混合する。混合物を試験管内に入れて11000 rpmで16分間遠心分離する。過剰の液体を流して湿試料を重量測定する。乾試料（g）当たりの液体（g）の吸収度を次式：

$$\text{吸収度} = \frac{\text{湿重量} - \text{乾重量}}{\text{乾重量}}$$

により決定した。

粒径はホリバ形式L-500レーザ回折粒径分析器による測定の平均粒径と定観した。

食品中における本発明の純球麻減微晶質セルロースの効力を一連の試

験により決定した。これら試験を以下に示す。

#### 粒度／味覚試験

進行中に試料の食品を食べて粒度と味覚を評価した。

#### 適度試験

生成品の試料をブレードで滑表面上に伸ばして適度度を評価した。

#### 実施例 1

加水分解した微晶質セルロース (MCC) の湿ケーキを繊維性セルロース樹木パルプ (固形量39.5%) から得て、平均粒径はホリバ形式 L-500 レーザー回折粒径分析器測定で20ミクロンであった。MCCを機械的に粒径減少 (摩滅) させて、高固体ミキサーを通してホリバによる測定で平均値8-10ミクロンとした。摩滅MCC (43%固体) を脱イオン水と混合して12%固体のMCCスラリーを製造した。スラリーをコロイドミルを通して水中に摩滅MCCを予備分散させた。このスラリーを次いで均質化して完全にMCCを分散させた。分散スラリーの粘度はブロックフィールド粘度計で5番スピンドルで20rpm 1分間の操作で11000cpsであった。

この摩滅MCCスラリーを、6インチ (15.2cm) 直径の湾曲管噴霧板を用いて1ガル/分 (3.8 L/分) のスラリー供給速度で (7500rpm で操作した8フィート (2.4 m) ボーエンスプレー乾燥器でスプレー乾燥した。乾燥器入口の温度は430°F (221.1°C) であり、出口の温度は190°F (87.8°C) であった。最終生成物は形態が球状であり、そして最終水分量は2.8%であった。生成物のふるい画分は19%+400メッシュ (37ミクロン) であり、ホリバの平均粒径分析は28ミクロンであった。試料の疎かさ密度は0.80 g/cdであった。

(37ミクロン) であり、ホリバの平均粒径分析は24ミクロンであった。試料の疎かさ密度は0.48 g/cdであった。

ホリバの平均粒径が12ミクロンのMCC粒子を製造する均質化工程を用いて上記運転を行った。均質化工程中のスラリー固体は9.7%であった。均質化工程の間に粘度は700cps から4000cps に増加した。スラリーを入口温度365°F (185°C)、出口温度190°F (87.8°C) で21000RPM噴霧によりスプレー乾燥した。最終生成物は形態がほとんど球状であり、水分量は3.6%であった。生成物のふるい画分は24%+400メッシュであり、ホリバの平均粒径は24ミクロンであった。試料のかさ密度は0.48 g/cdであった。

#### 実施例 8

4から25重量%の本発明の実質的球状の微晶質セルロースに加えて別の充填剤を含む普通の主成分をもつナッツバターを製造した。これらの普通の成分はナッツ、砂糖、塩及び加水分解植物油である。当該分野技術者に既存の別のナッツバター添加物も用い得た。

ナッツバターの官能性は以下の通り：

| %MCC | 品質           |
|------|--------------|
| 4    | ざらつかず、伸展可、良味 |
| 10   | ざらつかず、伸展可、良味 |
| 15   | ざらつかず、伸展可、良味 |
| 20   | ざらつかず、伸展可、良味 |
| 25   | ざらつかず、伸展可、良味 |

#### 実施例 9-13

以下は形態の異なる微晶質セルロースの特定物性を比較のために例示する。

#### 実施例 2-6

多数のスプレー乾燥実験を噴霧板のrpm を変えて行って粒径の異なる球状粒子を製造した。以下は噴霧条件評価と得られた粒径のデータである。

| 試料番号 | 板 RPM  | ふるい画分%+400 | ホリバ 粒径 (μ) | g/cd |
|------|--------|------------|------------|------|
| 2    | 19,450 | 12         | 24         | 0.57 |
| 3    | 16,400 | 23         | 28         | 0.60 |
| 4    | 14,000 | 32         | 31         | 0.63 |
| 5    | 14,600 | 36         | 37         | 0.63 |
| 6    | 12,750 | 42         | 42         | 0.65 |

#### 実施例 7

加水分解した微晶質セルロース (MCC) の湿ケーキを繊維性セルロース樹木パルプ (固形量39.5%) から得て、平均粒径はホリバ形式 L-500 レーザー回折粒径分析器測定で20ミクロンであった。MCC湿ケーキ (40%固体) を脱イオン水と混合して8.6%固体のMCCスラリーを製造した。MCCを機械的に粒径減少 (摩滅) させて、ホリバによる測定で平均値8-10ミクロンとし、このスラリーをホモジナイザーに通した。均質化工程の間に生じた粒径減少 (摩滅) の結果としてスラリーの粘度は400cps から5600cps に増加した。粘度はブロックフィールド粘度計で5番スピンドルで20rpm 1分間の操作で計測した。

摩滅MCCスラリーを、6インチ (15.2cm) 直径の湾曲管噴霧板を用いて1ガル/分 (3.8 L/分) のスラリー供給速度で18,250rpm で操作した8フィート (2.4 m) ボーエンスプレー乾燥器でスプレー乾燥した。乾燥器入口の温度は375°F (190.6°C) であり、出口の温度は190°F (87.8°C) であった。最終生成物は形態が球状であり、そして最終水分量が3.6%であった。生成物のふるい画分は18%+400メッシュ

実施例 9は商業的入手可能な微晶質セルロースであって、加水分解したのが先の摩滅なしにスプレー乾燥した。

実施例 10は実施例 9の商業的入手可能な微晶質セルロースであるが、さらに粒径を減じた。

実施例 11-13は本発明の実施態様であって、実施例 1の記載によって製造した。

データを下記の表に示す。

特表平7-507692 (5)

実施例 9-13 の上記表は本発明の新規生成物と他の微晶質セルロース生成物の相異を示す。本発明の生成物は粒徑に対して比較的一定の絶対かさ密度をもつ。該絶対密度は従来製造されたとの生成物よりも高い。さらには疎かさ密度は本発明では実質一定であって 0.50 から 0.60 の範囲にある。

粒径及び油吸収度の比較はどの所定粒径に対しても本発明の生成物は一層低い油吸収度をもつことを示す。

これらの特性は本発明の生成物が他の微晶質セルロース生成物よりも、ざらつき感触が少なく、滑らかでさらに伸展度がより大きいという特徴をもつことを明らかにする。

### 实施例 14-16

本発明の純球微晶質セルロースを次のとおりラードと代替させた：

### 实施例 14

4 重量%のMCC。 感触滑らか。

### 实施例 15

10重量%のMCC。 感触滑らか。

### 实施例 16

20重量%のMCC。 感触滑らか。

上記実施例は本発明の滑らかで球状の微晶質セルロースが食品とりわけ含油食品の充填剤としての使用に好適であることを示す。

| 物性                         | 実測値 9           | 実測値 10         | 実測値 11         | 実測値 12         | 実測値 13         |
|----------------------------|-----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| 水分%                        | 3.0             | 4.1            | 3.6            | 3.0            | 4.1            |
| ナリハ平均粒度 (197)              | 32              | 14             | 23             | 24             | 28             |
| 粒度% > 3.5 (400-197)        | 46              | 8              | 37             | 22             | 34             |
| 粒度% > 5.1ミクロン              | 21.4            | 1.5            | 16.1           | 6.0            | 11.5           |
| ふるい留分% + 4.0 (197, 37197)  | 58              | 0.2            | 21             | 5              | 24             |
| 緑かさ密度 (g/cm <sup>3</sup> ) | 0.42            | 0.30           | 0.56           | 0.53           | 0.53           |
| 絶対密度 (g/cm <sup>3</sup> )  | 1.34            | 0.92           | 1.64           | 1.36           | 1.55           |
| 油割吸収度 (g/MCC)              | 1.25            | 1.16           | 0.80           | 0.83           | 0.93           |
| 水吸収度 (g/g MCC)             | 1.49            | 1.76           | 1.37           | 1.53           | 1.47           |
| 燃焼特性                       | まったく燃焼<br>大気中では | 燃焼感低い<br>大気中では | 燃焼感低い<br>大気中では | 燃焼感低い<br>大気中では | 燃焼感低い<br>大気中では |
| 燃焼特性                       | 燃焼感低い<br>大気中では  | 燃焼感低い<br>大気中では | 燃焼感低い<br>大気中では | 燃焼感低い<br>大気中では | 燃焼感低い<br>大気中では |

|  |   |   |
|--|---|---|
| 國際調查報告   |   | INTERNATIONAL APPLICATION NO.<br>PCT/JP93/08160   |
| <b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b><br>(IPC) : A23L 1/08, A23N 3/04<br>U.S. CL. : 428/306, 518, 519, 579, 618, 804<br>According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC   |   |   |
| <b>B. FIELDS SEARCHED</b><br>In addition to document searched (classification system followed by classification symbols)<br>U.S. : 428/306, 518, 519, 579, 618, 804  |   |   |
| Documentation has not been searched for documents to which the documents are included in the fields searched   |   |   |
| Electronic data has been used during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)<br>SEARCH TERMS: MICROCRYSTALLINE CELLULOSE, STARCH, STURTY, SPIRICAL, DEARMS BUTTER   |   |   |
| <b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>  |   |   |
| Category*  | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant paragraph   | Relevant to claim No.   |
| Y  | US, A, 3,023,104 (Battista) 27 February 1962, col. 4, lines 1-8, 33-38, 60-65, col. 3, lines 71-75, col. 5, lines 15-20, col. 4, lines 60-80.   | T-11  |
| <input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Form C. <input type="checkbox"/> See parent family entries.   |   |   |
| *A* Abstract of cited documents<br>*L* Abstracts referring to the present case of the art which is not considered to be of particular relevance<br>*C* Earlier documents cited or not after the international filing date<br>*X* Documents which are cited during the prosecution of the present case but which are not considered to be of particular relevance<br>*D* Documents referred to in oral discussions, oral, addition or other documents<br>*P* Documents published after the international filing date but later than the priority date claimed | *T* Documents of particular relevance which are cited in the international filing date of the present case and are considered to be of particular relevance<br>*E* Abstracts of particular relevance, the abstracts are considered to be of particular relevance and are considered to be of particular relevance<br>*F* Abstracts of particular relevance, the abstracts are considered to be of particular relevance and are considered to be of particular relevance<br>*G* Abstracts of particular relevance, the abstracts are considered to be of particular relevance and are considered to be of particular relevance | *T* Documents of particular relevance which are cited in the international filing date of the present case and are considered to be of particular relevance<br>*E* Abstracts of particular relevance, the abstracts are considered to be of particular relevance and are considered to be of particular relevance<br>*F* Abstracts of particular relevance, the abstracts are considered to be of particular relevance and are considered to be of particular relevance<br>*G* Abstracts of particular relevance, the abstracts are considered to be of particular relevance and are considered to be of particular relevance |
| Date of the earliest completion of the international search<br><b>24 NOVEMBER 1993</b>   |   | Date of mailing of the international search report<br><div style="text-align: center; font-size: 1.2em; font-weight: bold;">06 DEC 1993</div>   |
| Name and mailing address of the ISA/US<br>Patent Office<br>Washington, D.C. 20541  |   | Authorized officer<br><div style="text-align: center;">HELEN F. PRATT</div>   |
| Fee/charge No. NOT APPLICABLE  |   | Telephone No. (703) 305-1978  |

Form PCT/ISA/210 (current sheet) July 1992

フロントページの続き

(81) 指定国 EP(AT, BE, CH, DE,  
DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, M  
C, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF, CG  
, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN,  
TD, TG), AT, AU, BB, BG, BR, BY,  
CA, CH, CZ, DE, DK, ES, FI, GB, H  
U, JP, KP, KR, KZ, LK, LU, MG, MN  
, MW, NL, NO, NZ, PT, RO, RU, SD,  
SE, SK, UA, VN